

分子動力学法による気体衝撃波のシミュレーション

越 光男*, 斉藤 務**, 名見耶瑩***

松為宏幸*, 高山和喜***

EXP-6 ポテンシャルにより相互作用している5120個のアルゴン原子中を伝播する衝撃波を分子動力学法によりシミュレートした。計算された衝撃波背後の熱平衡時の状態量はウゴニオの関係式から得られる値と良く一致し、このような少数の粒子を対象とした分子動力学法によっても衝撃波現象がシミュレート出来る事が確認された。また熱平衡における状態量のみならず、衝撃波面の厚さ及び波面における密度プロファイルも実測値とほぼ一致し、衝撃波の構造や反射過程の徹視的な過程を分子レベルから解明する為の手段として分子動力学法が有用であることが示された。

1. はじめに

気体中を衝撃波が通過すると、気体の温度、圧力、密度は極めて急激に変化する。このような急激な変化を伴う衝撃波面の構造を理論的に取り扱う場合、気体を連続的な物質の流れとみなす考え方と、原子・分子の集合体として取り扱う考え方とがある。前者の考え方によれば、衝撃波の構造は気体の粘性や熱伝導等の巨視的な物理量によって決められる。気体の粘性に基づく圧縮応力が速度勾配に比例し (Newtonの法則) また熱伝導が温度勾配に比例する (Fourierの法則) として、質量・運動量・エネルギーの三保存則を変形するとよく知られたNavier-Stokesの式が得られる。この式の近似解から衝撃波の構造を求めることができるが、求められた衝撃波の厚さは、特に強い衝撃波 (マッハ数 $Ma > 2$) の場合に、実測値に比べてはるかに薄い値となる事は古くから指摘されている¹⁾。この不一致は強い衝撃波では波面における物理量の変化があま

りに急激であるために、圧縮応力や熱伝導に関する線形法則が成立しなくなる事に起因すると考えられている。

強い衝撃波において衝撃波面が薄くなると、その中で分子衝突の頻度は減少し、この領域内では気体をもはや連続体とはみなせなくなる。この場合には衝撃波現象を原子・分子の集団の状態変化として考える必要があるが、そのための一つの方法として、流体力学に気体分子運動論を取り入れる試みが古くからなされている²⁾。温度や圧力などの巨視的な状態量は気体を構成する分子の速度分布関数から導出されるから速度分布関数を支配する方程式 (Boltzmann方程式) を導入しこれを解けばよい。Boltzmann方程式も解析的には解けないが、比較的成功している近似解法として bimodalモデルと呼ばれる方法がある。この方法では衝撃波の中では超音速の気体と亜音速の気体が混ざっていると考え、衝撃波面内の速度分布関数を衝撃波前方と後方の気体の熱平衡時の分布関数の線形和で近似する。この分布関数は二つの速度で極大を持つが、その妥当性についての理論的・実験的な根拠はない。bimodalモデルにより計算された衝撃波の厚さは実験値と良く一致している³⁾ もの、波面の密度プロファイルは必ずしも一致しない事が指摘されている⁴⁾。

これらの例に明らかなように、流体力学方程式に基づく取り扱いによる衝撃波の徹視的な構造の解明には限界がある。分子の速度分布関数が極めて急激に変化する衝撃波面での徹視的な構造は分子・原子レベルから考える必要があるが、そのための最も直接的な方法

1994年10月26日受理

*東京大学工学部化学システム工学科

〒113 東京都文京区本郷 7-3-1

TEL 03-3812-2111 (内7308)

FAX 03-5684-3644

**日本クレイ(株)

東北大学流体科学研究所スーパーコンピュータセンター内

TEL 022-227-2419

***東北大学流体科学研究所

〒980 仙台市青葉区片平 2-1-1

TEL 022-263-0895

FAX 022-227-7390

が非平衡分子動力学法である。この方法では個々の分子についての運動方程式を解いて速度分布関数を直接に求めるので、分子間相互作用のほかには近似なしに衝撃波の構造が求められる。非平衡分子動力学法による衝撃波のシミュレーションは結晶⁵⁾や液体⁶⁾等の高密度の媒体を対象として行われている。一方、気体中を伝播する衝撃波については最近になってようやく分子動力学法によるシミュレーションが開始された。気体中の衝撃波では分子の移動距離が結晶や液体中よりけた違いに大きいため、これを分子動力学法で扱うためには広い空間に分布している多数の分子の運動方程式を長時間にわたって積分しなければならない。このような膨大な計算量を必要とするシミュレーションも、近年のコンピュータの高速化・大容量化によって可能になりつつある。Salomons等⁷⁾は剛体球を対象として衝撃波のシミュレーションを行い、衝撃波面内では圧縮応力と熱伝導がニュートンおよびフーリエの法則から予測される値よりも各々30および70%大きいことを見だしている。こうした分子動力学法によるシミュレーションは近似を用いずに解が求められる点で優れているが、限られた個数の分子の限定された空間でのシミュレーションによって、衝撃波のように急激に変化する現象の巨視的な状態量がどの程度正確に予測できるかは明らかではない。これを検討するために、本研究ではより現実的な分子間相互作用ポテンシャルを用いて気体中を伝播する衝撃波の分子動力学法によるシミュレーションを行い、実験値との比較をおこなった。まず得られた衝撃波特性値をウゴニオの式から得られる値と比較することによりその精度を検討し、ついで衝撃波の厚さと密度プロファイルを実験値と比較した。

2. 計算方法

衝撃波の進行方向をz軸にとり、 $L_x \cdot L_y \cdot L_z$ の長方形の領域中の5120個のAr原子をシミュレーションの対象として計算を行った。Ar原子の原子間相互作用 $\phi(r)$ としてはexp-6ポテンシャル

$$\phi(r) = \epsilon \left[\frac{6}{\alpha - 6} \exp\left(\alpha \left(1 - \frac{r}{\sigma}\right)\right) - \frac{\alpha}{\alpha - 6} \left(\frac{\sigma}{r}\right)^6 \right] \quad (1)$$

を用いた。ここで r は粒子間距離、ポテンシャルパラメータ ϵ 、 σ 、 α は各々、引力の深さ、粒子の大きさ、斥力ポテンシャルの堅さを表すパラメータである。高温・高圧での物性に対して重要である斥力部分については通常用いられるLennard-Jonesポテンシャルよりexp-6ポテンシャルの方が現実的であると考えられる。用いたポテンシャルパラメータは $\epsilon/k = 123.2\text{K}$ 、 $\sigma = 0.3866\text{nm}$ 、 $\alpha = 14$ である。今回の計算ではすべての

場合について $L_x = L_y = 10\text{nm}$ 、 $L_z = 200\text{nm}$ とした。即ち初期密度 ρ_1 はすべて一定で $\rho_1 = 0.0169\text{g/cm}^3$ である。これらの各々の粒子についての運動方程式を与えられた初期条件のもとでVerlet法を用いて解いた。積分の時刻は $2 \times 10^{-15}\text{s}$ とした。積分を開始するためには各粒子の配置と速度ベクトルを与えなければならない。各粒子を体心立方構造を持つ格子点に配置した後、一様乱数によりこの格子点から変位させてランダムな初期配置を実現した。各粒子の速度ベクトルは速度分布関数が $T_1 = 300\text{K}$ のMaxwell分布に従うようにモンテカルロ法(ここでは一様乱数を用いた合成棄却法を用いた)により決定した。初期圧力は $P_1 = 1.05\text{MPa}$ である。なお衝撃波前方の状態量を添字1で、後方を添字2で表す。衝撃波を発生させる前に、与えた初期配置にある粒子を完全な熱平衡状態に緩和させるために、NVT(粒子、体積、温度一定)集合に対する分子動力学計算を5000ステップ実行した。この計算においては $z=0$ 及び $z=L_z$ の位置に完全弾性反射壁をおき、x及びy方向に対しては周期境界条件を適用した。温度を $T=300\text{K}$ に保つために速度スケール法により温度コントロールを行った。また計算時間を短縮するためにブック・キーピング法を適用した。即ち注目する粒子から半径2nm以内に存在する粒子のリストを作り、このリストにある分子のみについて計算する。全ての粒子についてのリストを作り、このリストは積分10ステップ毎に更新する。粒子間相互作用の計算において15nm上離れている粒子との相互作用は無視した。

系が十分に平衡状態に緩和した後に、 $t=0$ で $z=0$ の位置にある完全弾性反射壁をピストンと考え、これを一定速度 U_p でZ軸の正方向に動かし、衝撃波を発生させる。 $U_p = 400 - 1200\text{m/s}$ の範囲で計算を行い、衝撃波速度 U_s ・温度 T_2 ・圧力 P_2 を求め、ウゴニオ式から得られる衝撃波パラメータと比較する。温度・圧力等の状態量は分子集団に対して定義される量であるが、ピストン前方の衝撃波の温度、圧力を求めるために $z=0$ から $z=L_x (=200\text{nm})$ の間を $\Delta = 1\text{nm}$ の小領域に分割した。小領域 k の温度 T_k 及び圧力 P_k は次式により求めた。

$$T_k = \frac{1}{3N_k k} \sum_{i=1}^{N_k} \left[(V_{xi} - \langle V_x \rangle)^2 + (V_{yi} - \langle V_y \rangle)^2 + (V_{zi} - \langle V_z \rangle)^2 \right] \quad (2)$$

$$P_k = \frac{N_k}{V_k} k T_k - \frac{1}{3V_k} \sum_{i=1}^{N_k} \sum_{j=1}^{N_k} \frac{d\phi(r_{ij})}{dr} r_{ij} \quad (3)$$

ここで N_k 、 V_k は小領域 k 中の粒子数、体積であり、 r_{ij}

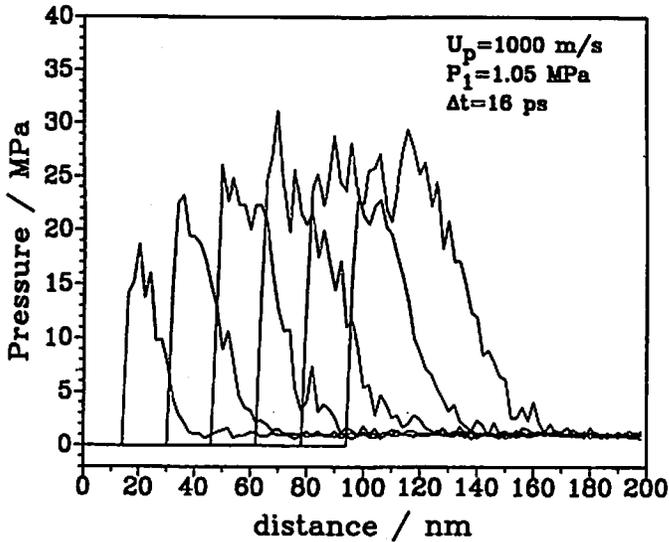


Fig. 1 Calculated pressure profiles of the shock wave in Ar driven by moving wall with the velocity $U_p=1000\text{m/s}$, $P_1=1.05\text{MPa}$, $T_1=300\text{K}$, and the time interval = 16ps.

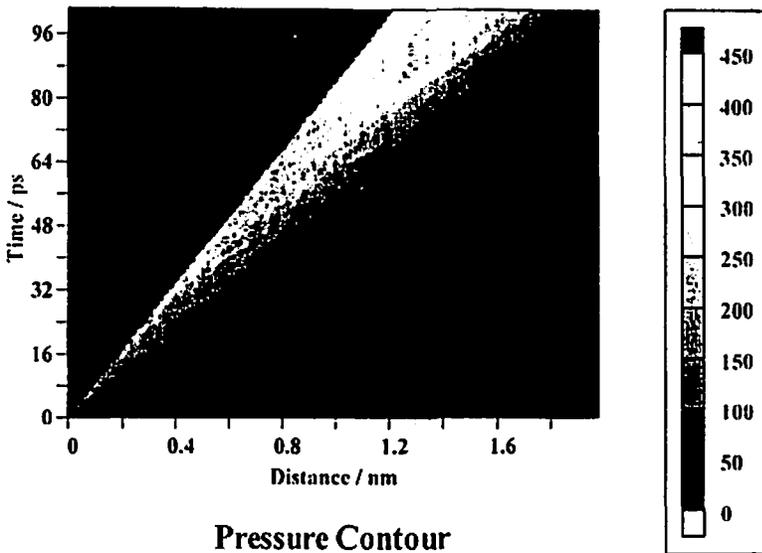


Fig. 2 Z-t diagram for the pressure contour. $U_p=1200\text{m/s}$, $P_1=1.05\text{MPa}$, $T_1=300\text{K}$.

は粒子 i と j の距離, (V_{xi}, V_{yi}, V_{zi}) は粒子 i の速度である。また $\langle V_x \rangle_k, \langle V_y \rangle_k, \langle V_z \rangle_k$ は小領域 k 中の全粒子の平均速度であり, 十分多くのサンプルに対する平均 (空間平均又は時間平均) をとれば $\langle V_x \rangle_k = \langle V_x \rangle, \langle V_y \rangle_k = 0, \langle V_z \rangle_k = U_p$ となる。(3) 式の第1項は理想気体の圧力であり, 第2項は分子間力による非理想性からの寄与である。

比較のためにウゴニオ式から衝撃波パラメータを求めたが, 初気圧が1.05MPaと高いため, 強い衝撃波

では衝撃波背後の圧力が10MPa以上になる。従って理想気体の仮定は用いず, Kataoka³⁾ によって求められた $\exp-6$ ポテンシャルに対して得られている非理想気体の状態方程式を用いて衝撃波パラメータを計算した。

3. 結果及び考察

3.1 衝撃波の発生と衝撃波パラメータ

ピストンが動き出してから16ps毎の圧力プロファイル $U_p=1000\text{m/s}$ の場合について図1に示す。こ

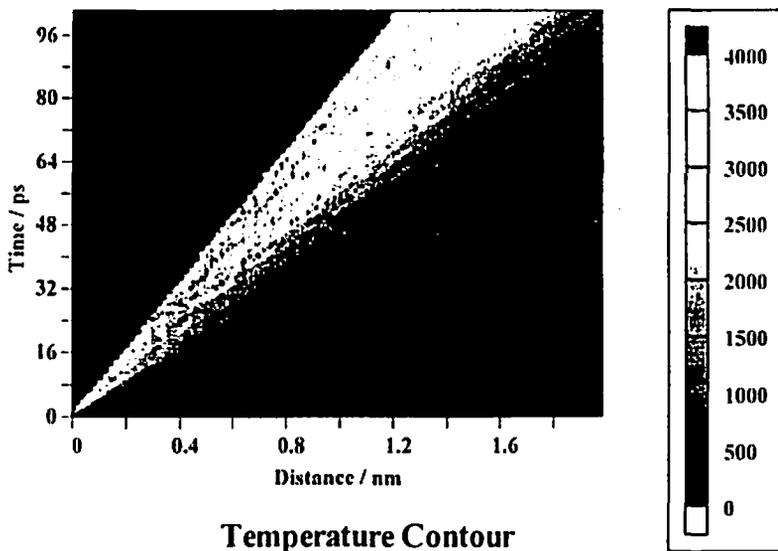


Fig. 3 Z-t diagram for the temperature contour. Conditions are the same as in Fig. 2.

の圧力プロファイルは1nm幅の微小セル中にある少数の粒子(衝撃波背後で50-70個程度)についての平均値から得られたものであり、サンプル数が少ないためにその変動が大きい。ピストン駆動直後から発生した三角形の圧縮波のバイルアップにより衝撃波が形成されて行く様子が分かる。 $U_p=1200\text{m/s}$ の場合の衝撃波の形成と伝播の様子をz-t等高面図として図2に示す。 $t=0$ で発生した圧力波は16psまでは一定の速度で進行しているが衝撃波に転移するとその速度は減衰している。図2の $t>16\text{ps}$ の領域での衝撃波速度はすぐに定常に達するが、この伝播速度は1685m/sであり、ウゴニオの式とKataokaの状態方程式から求めた値(1980m/s)と極めて良く一致する。また衝撃波の背後に、衝撃波速度より早く伝播する波の軌跡がみられるがこの伝播速度は2146m/sであり、ウゴニオ式から予測される衝撃波背後のP波(= $u_2 + a_2$, a_2 は音速)の伝播速度(2172m/s)にはほぼ等しい。一方、 $t<16\text{ps}$ での圧力波の伝播速度は2500m/sであり、 $u_2 + a_2$ の速度よりも大きい。この初期における速い圧力波の伝播の機構は明らかではないが、ピストン駆動直後ではピストン前面の粒子の並進速度分布が非平衡になっていて、平衡時の平均並進速度より速い速度を持つ分子が存在しているために実効的な音速が増大していると予想される。ただし、(2)式から求めた $t<16\text{ps}$ でのピストン前面の温度は $t>16\text{ps}$ での衝撃波背後の温度とほぼ等しい。圧縮波から衝撃波への転移過程における並進自由度の非平衡性とその圧力波の伝播速度に及ぼす影響についてはさらに詳しい解析が必要である。

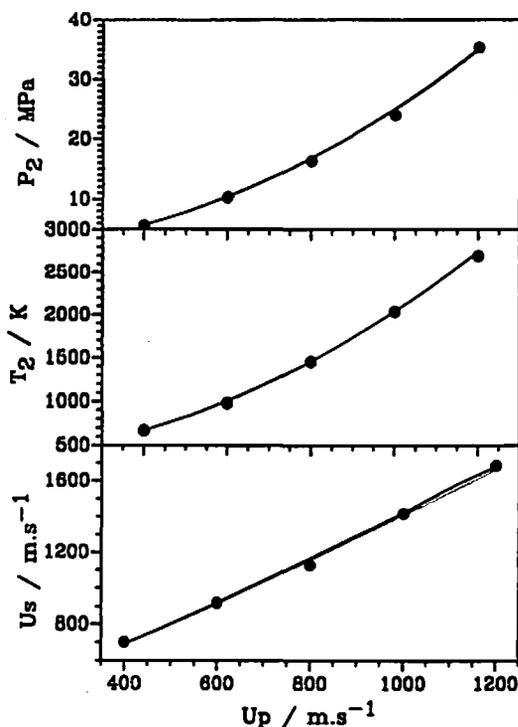


Fig. 4 Comparison of the shock parameters. Closed points: present molecular dynamics simulations, solid curves: Hugoniot equations with Kataoka's equation of state, dotted curves: Hugoniot equations with the equation of state for the ideal gas. $T_1=300\text{K}$, $P_1=1.05\text{MPa}$.

図2と同じ条件下での温度に関するz-t等高面図を図3に示す。図から明らかのように、圧力波の場合と

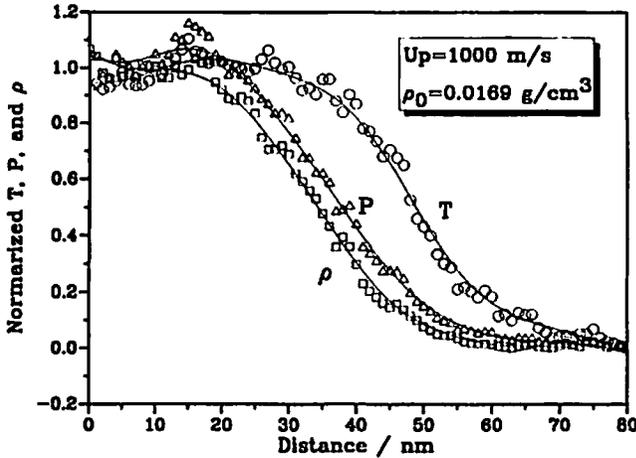


Fig. 5 Calculated profile of the shock wave. $U_p=1000\text{m/s}$, $T_1=300\text{K}$, $P_1=1.05\text{MPa}$. The vertical axis corresponds to $(T-T_1)/(T_2-T_1)$, $(P-P_1)/(P_2-P_1)$ or $(\rho-\rho_1)/(\rho_2-\rho_1)$. Solid curves are obtained by the spline fit to the data points.

同様にピストン駆動直後では伝播速度 2490m/s の波が伝播しているが、この波は 40ps 付近で衝撃波と分離している。分離した後の衝撃波の伝播速度は図2と誤差範囲内で同じであるが、衝撃波への転移点が圧力波より遅く、温度によって定義される波面は常に圧力波面に先行している。ただしここで用いている温度は(2)によって定義される平均速度にもとづく温度であって、系が熱平衡にある事を示している訳ではない。圧力波と“温度”の波の挙動の違いは、むしろ衝撃波面内で並進自由度が非平衡分布になっていることを示唆しているが、この点についても衝撃波面内での速度分布の詳細な検討が必要である。

図4にいくつかのピストン速度(=接触面粒子速度)について分子動力学シミュレーションによって求められた衝撃波の定常速度をウゴニオの式による計算結果と比較する。ここで分子動力学法による衝撃波速度は、図1のような圧力波が定常に進行している時間領域において、圧力が $(P_1+P_2)/2$ に等しくなる点の軌跡から求めた。得られた衝撃波速度はウゴニオの結果と良く一致している。図4において衝撃波背後の温度及び圧力についても比較したが、速度同様に良く一致しており、衝撃波現象が少なくともその平衡物性値に関する限りは、 5000 程度の少数の粒子を対象にした分子動力学計算によってシミュレートできる事が結論される。

3.2 衝撃波の構造

気体中を伝播する衝撃波中に微少空間を考え、この中に存在するごく少数の分子のみを観測したとすると、

この少数の分子集団の圧力や温度は図1に示されるように大きく変動している。実験的に観測される密度変化や圧力・温度等の巨視的な量と分子動力学法の結果を対応させる場合には、統計的に十分な量のサンプル粒子についての平均値を用いなければならない。衝撃波背後の温度や圧力については広い空間領域についての平均値を求めればよいが、衝撃波の構造・厚さを調べる場合には z 軸方向の空間分解能を高くする必要がある。定常に伝播する衝撃波に関しては、時間平均をとることにより空間分解能を損なわずにサンプル粒子数を増加させる事が出来る。分子動力学法により求められた衝撃波速度を用いて z 軸を衝撃波面に固定した座標系に変換し、 $z=1\text{nm}$ の幅の微少領域の温度、圧力、密度についての時間平均を求めた。温度及び圧力プロファイルから求めた衝撃波速度が互いに一致し、かつ一定である時間領域について、 $30000-50000$ ステップ($60-100\text{ps}$)にわたり、時間平均をとり、衝撃波面のプロファイルを求めた。得られた結果の一例を図5に示す。図2及び3からも解るように、圧力・密度で定義される衝撃波面に先行して温度で定義される波が伝播している。温度の波が圧力・密度の波に先行することはMuckenfuss³⁾によるbimodalモデルによる計算でも示されている。

図5のようなプロファイルから衝撃波の厚さを評価することが出来る。通常衝撃波の厚さ δ は、例えば密度プロファイルの場合では密度変化の最大勾配の逆数で定義される。

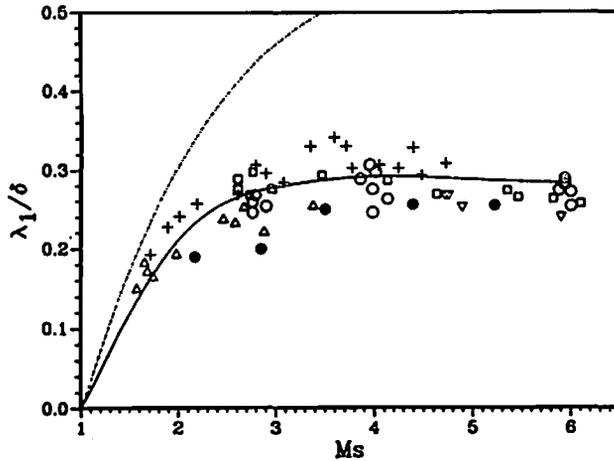


Fig. 6 Comparison of the shock thickness with experimental and theoretical values. Closed points: present molecular dynamics simulation, open circles: experimental data by Schmidt¹⁰, upward triangles: experimental data by Robben and Talbot¹⁴, downward triangles: experimental data by Camac¹¹, squares: experimental data by Russell¹², crosses: experimental data by Linzer and Hornig⁹. Solid curve: calculated by the bimodal model¹¹, chain curve: calculated by using the Navier-Stokes equations¹¹.

$$\delta = (\rho_2 - \rho_1) \left(\frac{d\rho}{dz} \right)^{-1} \quad (4)$$

同様の式によって温度、圧力プロファイルに対しても厚さが定義される。計算データをスプライン関数によりフィッティングして(4)式に従って厚さを求めたが、フィッティングの誤差範囲内(±13%)でいずれの定義による厚さも互いに一致した。

衝撃波の厚さは、衝撃波による密度変化に伴う屈折率の変化を光の反射率の測定から検出する方法⁹⁾や電子ビームの減衰から密度変化を検出する方法¹⁰⁾等により多くの研究者によって測定されている。観測可能な程度に衝撃波の厚さを引き延ばすために、これらの測定はいずれも比較的低圧下で行われており、今回の $P_1 = 1.05 \text{ MPa}$ でのシミュレーションの結果とは直接の比較は出来ない。しかしながら衝撃波の厚さは粒子の平均自由行程に比例すると考えられるので、通常は衝撃波の厚さを平均自由行程で規格化して実験値と理論値の比較がなされている。ここでは次式で定義される衝撃波前方での平均自由行程 λ_1 を用いて実験値との比較を行った。

$$\frac{1}{\lambda_1} = \sqrt{2} \pi n_1 \sigma^2 \Omega^{(2,2)} \left(\frac{kT_1}{\epsilon} \right) \quad (5)$$

ここで n_1 は衝撃波前方での数密度、 $\Omega^{(2,2)}(kT/\epsilon)$

は衝突積分で $T_1 = 300 \text{ K}$ のArの場合にはその値は1.093である。今回のシミュレーションの場合、(5)式から求めた衝撃波前方の平均自由行程は5.40 nmであった。平均自由行程で規格化した計算値と測定値の比較を図6に示す。実験値は測定者によるバラツキが大きい、今回のシミュレーションの結果は衝撃波の厚さが厚い方の測定値(Robben等¹⁴, Schmidt¹⁰等)による電子ビームの減衰から求められた測定値)に近く、シミュレーションの結果は実験結果とほぼ対応していると考えられる。

図6にはNavier-Stokesの式による計算値¹¹⁾とBimodalモデルによる結果¹¹⁾も併せて示してある。Navier-Stokesの式の解は粘性係数が $T^{0.5}$ に比例するとした時の計算値であり、Bimodalモデルの計算値は分子間相互作用として $\exp - 6$ ポテンシャルを用いて得られた値である。古くから指摘されているようにNavier-Stokesの解では強い衝撃波ではその厚さが薄すぎる。これに比してBimodalモデルの結果はほぼ実験値と一致しているが、今回のシミュレーション結果はこれに比べてわずかに厚い衝撃波面を与えている。このシミュレーションとBimodalモデルの結果の違いを明らかにするためには、衝撃波面内での速度分布関数の詳細な検討が必要である。

Birdによって指摘されているように、プロファイルの最大勾配で定義される衝撃波の厚さ((4)式)は

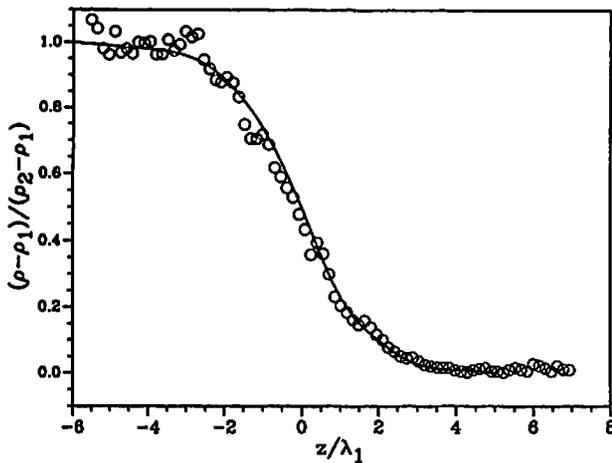


Fig. 7 Comparison of the density profile at $Ms=4.4$ obtained by the molecular dynamic simulation (open circles) with the experimental data at $Ms=4$ obtained by Schmidt¹⁰⁾ (solid curve).

計算モデルの妥当性を論じる為に十分ではない⁴⁾ので、衝撃波面のプロファイルを直接比較した結果を図7に示す。ここで実験値(実線)としてはSchmidtの論文(文献10)の図6のデータ($Ms=4$)を読みとってスプライン関数で近似したものである。なお本研究のシミュレーションは $Ms=4.4$ の場合であり、実験値のマッハ数($Ms=4$)より若干大きい、Schmidtの実験結果によれば $Ms=4$ と6の場合で規格化したプロファイルに大きな違いは無い。最大密度勾配から求めた厚さはシミュレーションの結果の方が長い、図7から明らかなように、プロファイル全体の様子は非常に良く一致している。

4. 結論

気体中を伝播する衝撃波が、微少な体積中の限られた数の粒子の運動を対象とする分子動力学シミュレーションによってどの程度精度良く検討できるのかを明らかにすることを目的として、 $10 \times 10 \times 200$ nmの体積中の5120個のArを対象とする分子動力学シミュレーションを行った。このように限られた個数の粒子であっても十分に長時間にわたる時間平均をとることによって、衝撃波背後の温度・圧力・密度などの状態量や衝撃波速度はウゴニオ式の解と良く一致する。また衝撃波の厚さやプロファイルを実験値と比較したが、大きな矛盾はなく、このような分子動力学シミュレーションが分子レベルから衝撃波現象の本質を解明するのに有用であることが示唆される。

ピストン駆動直後の圧縮波内部の並進速度分布の非平衡性や衝撃波面での速度分布のより詳細な検討が、圧縮波から衝撃波への転移の機構やBimodalモデルの

検討の為に必要であり、これらは今後の課題として残されている。

謝辞

本研究の一部は火薬工業技術奨励会の研究助成金により実施された。ここに感謝の意を表す。

文献

- 1) H. W. Liepmann, R. Narasimha, and M. T. Chahine, *Phys. Fluid* 5, 1313 (1962)
- 2) S. Chapman and T. G. Cowling, "The mathematical theory of non-uniform gases" Cambridge Univ. Press, London (1952)
- 3) C. Muckenfuss, *Phys. Fluid* 5, 1325 (1962)
- 4) G. A. Bird, *Phys. Fluid* 13, 1172 (1970)
- 5) D. H. Tsai and S. F. Trevino, *J. Chem. Phys.* 81, 5636 (1984)
- 6) W. G. Hoover, *Phys. Rev. Lett.* 42, 1531 (1979)
- 7) E. Salomons and M. Mareschal, *Phys. Rev. Lett.* 69, 269 (1992)
- 8) Y. Kataoka, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* 65, 2093 (1992)
- 9) M. Linzer and D. F. Hornig, *Phys. Fluid* 6, 1661 (1963)
- 10) B. Schmidt, *J. Fluid Mech.* 39, 261 (1961)
- 11) M. Camac, "Rarefied Gas Dynamics, I" (Ed. de Leeuw) Academic Press, New York (1965)
- 12) D. Russell, *ibid*
- 13) F. Shultz-Grunow and A. Frohn, *ibid*
- 14) F. Robben and L. Talbot, *Phys. Fluid* 9, 633 (1966)

Molecular dynamics simulation of shock waves in gas phase Ar

by M. KOSHI*, T. SAITO**, H. NAGOYA***
H. MATSUI* and K. TAKAYAMA***

Shock waves in gas phase Ar were investigated by means of the molecular dynamics simulation. By using exp-6 intermolecular potential, calculations were performed for 5120 Ar atoms confined in a box of 10x10x200nm. Shock wave was generated by moving the end wall to the z-axis direction and velocities of each atoms in front of the wall were calculated. Temperature, pressure and density were estimated as a function of distance by averaging appropriate quantities in very thin cells. These properties at the thermal equilibrium behind shock waves were in good agreement with the values obtained from Hugoniot relations. Density profiles and its thickness at the shock front agreed well with the experimental data. In spite of very small numbers of Ar atoms in a very small sampling volume, the macroscopic quantities behind shock waves could be evaluated well by the present molecular dynamics simulations. It was also shown that the molecular dynamics simulation provided the useful tools for the understanding of the shock wave structure on the basis of microscopic intermolecular interactions.

(*Department of Chemical System Engineering, The University of Tokyo,
7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113, Japan

**Cray Research Center, Super Computer Center of Tohoku University

***Institute of Fluid Science, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku,
Sendai 980, Japan)